

## MANUFACTURING METHOD OF ORGANIC LIGHT-EMITTING DIODE

Publication number: JP2002151259 (A)

Publication date: 2002-05-24

Inventor(s): PENG KUANG-CHUNG

Applicant(s): HELIX TECHNOLOGY INC

Classification:

- International: H05B33/10; C23C14/34; H01L33/00; H01L51/50;  
H01L51/56; H01L51/00; H01L51/30; H01L51/40;  
H05B33/10; C23C14/34; H01L33/00; H01L51/50;  
H01L51/00; H01L51/05; (IPC1-7): H05B33/10; C23C14/34;  
H01L33/00; H05B33/14; H05B33/22  
H01L51/56

- European:

Application number: JP20010124965 20010423

Priority number(s): TW20000123456 20001107

Also published as:

JP3775482 (B2)

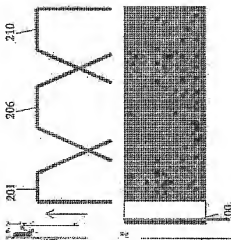
US2002081372 (A1)

US6495198 (B2)

TW463522 (B)

Abstract of JP 2002151259 (A)

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve physical characteristics and electric characteristics of an organic light-emitting diode by obscuring (non-precipitating) heterojunction to improve light emission and recombination efficiency. SOLUTION: The method is to form a positive electrode, an organic light-emitting layer and a negative electrode in turn on a substrate by deposition or sputtering. When an interface (heterojunction) of the positive electrode and the organic light-emitting layer is formed, a film-making speed of the positive electrode on the substrate is gradually lowered and at same time, a film-making speed of the organic light-emitting layer on the substrate is gradually accelerated, and when an interface (heterojunction) of the organic light-emitting layer and the negative electrode is formed, a film-making speed of the organic light-emitting diode is gradually lowered and at same time, a film-making speed of the negative electrode is gradually accelerated to realize gradient density distribution between each two layers of the positive electrode layers, the organic light-emitting and the negative electrode layers and obscure heterojunction between each two layers, hence, the organic light-emitting diode with the heterojunction obscured.



Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-151259

(P2002-151259A)

(43) 公開日 平成14年5月24日 (2002.5.24)

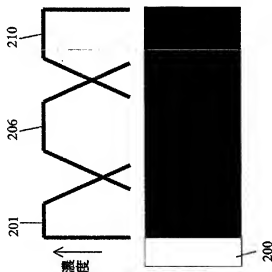
| (51) Int.Cl. <sup>7</sup> | 識別記号                         | F I           | テマコード <sup>*</sup> (参考)  |
|---------------------------|------------------------------|---------------|--|
| H 0 5 B 33/10             |                              | H 0 5 B 33/10 | 3 K 0 0 7  |
| C 2 3 C 14/34             |                              | C 2 3 C 14/34 | N 4 K 0 2 9  |
| H 0 1 L 33/00             |                              | H 0 1 L 33/00 | A 5 F 0 4 1  |
| H 0 5 B 33/14             |                              | H 0 5 B 33/14 | B  |
| 33/22                     |                              | 33/22         | B  |
|                           |                              | 審査請求 有        | 請求項の数12 O L (全 7 頁)  |
| (21) 出願番号                 | 特願2001-124965 (P2001-124965) | (71) 出願人      | 500525520<br>和立聯合科技股▲ふん▼有限公司<br>台湾 新竹市科学工業園區工業東路15号<br>1 楼   |
| (22) 出願日                  | 平成13年4月23日 (2001.4.23)       | (72) 発明者      | 彭 光中<br>台湾台北市虎林街242巷69號  |
| (31) 優先権主張番号              | 8 9 1 2 3 4 5 6              | (74) 代理人      | 100064908<br>弁理士 志賀 正武 (外7名)   |
| (32) 優先日                  | 平成12年11月7日 (2000.11.7)       | F ターム (参考)    | 3K007 AB05 AB11 AB15 AB18 CA01<br>CA05 CB01 DA01 DB03 EB00<br>FA01<br>4K029 AA09 BA82 BB02 BC07 BD00<br>CA05<br>5F041 AA03 CA45 CA87 CA88 CA98 |
| (33) 優先権主張国               | 台湾 (TW)                      |               |  |

(54) 【発明の名称】 有機発光ダイオードの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 ヘテロ接合をあいまい化（非急峻化）して、電子と正孔との発光再結合効率を高め、有機発光ダイオードの物理的特性および電気特性を改善する。

【解決手段】 基板上に陽極と有機発光層と陰極とを蒸着またはスパッタリングなどで順番に形成するものであって、陽極と有機発光層との界面（ヘテロ接合）を形成する時、陽極の基板への成膜速度を徐々に低下させると同時に、有機発光層の基板への成膜速度を徐々に高め、有機発光層と陰極との界面（ヘテロ接合）を形成する時には、有機発光層の基板への成膜速度を徐々に低下させるとともに、陰極の基板に対する成膜速度を次第に高めて、陽極と有機発光層と陰極との各層間に傾斜濃度分布を実現し、各層間のヘテロ接合をあいまい化することで、ヘテロ接合をあいまい化した有機発光ダイオードを形成する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも、基板を提供するステップと、前記基板を固定して水平方向に移動する固定手段、および前記固定手段の移動経路上に順番に配列される陽極成膜材料源と有機発光層成膜材料源と陰極成膜材料源とを含む複数の成膜材料源を提供するステップと、前記固定手段により、前記基板を前記陽極成膜材料源の上方に移動させて陽極を形成するステップと、前記陽極成膜材料源が陽極を完全に形成する前に、前記基板を前記有機発光層成膜材料源の上方へ徐々に移動させて有機発光層を形成するステップと、前記有機発光層成膜材料源が前記有機発光層を完全に形成する前に、前記基板を前記陰極成膜材料源の上方へ徐々に移動させて陰極を形成するとともに、前記陽極および前記有機発光層ならびに前記陰極間のヘテロ接合をあいまい化するステップとを具備する有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項2】 少なくとも、基板を提供するステップと、前記基板を固定する固定手段、および垂直方向に上下移動するとともに前記基板の下方に均一に分布される陽極成膜材料源と有機発光層成膜材料源と陰極成膜材料源とを含む複数の成膜材料源を提供するステップと、前記陽極成膜材料源を上昇させて前記基板に近づけ、前記基板上に陽極を形成するステップと、前記陽極成膜材料源が陽極を完全に形成する前に、前記陽極成膜材料源を徐々に降下させるとともに、前記有機発光層成膜材料源を徐々に上昇させて有機発光層を形成するステップと、前記有機発光層成膜材料源が有機発光層を完全に形成する前に、前記有機発光層成膜材料源を徐々に降下させるとともに、前記陰極成膜材料源を徐々に上昇させて陰極を形成し、かつ前記陽極および前記有機発光層ならびに前記陰極間のヘテロ接合をあいまい化するステップとを具備する有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項3】 上記基板に上記陽極と上記有機発光層と上記陰極とを形成することが、蒸着を含むものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項4】 上記基板に上記陽極と上記有機発光層と上記陰極とを形成することが、スパッタリングを含むものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項5】 上記陽極および陰極間に、さらに、正孔注入層と正孔伝導層と電子伝導層とを含むものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項6】 上記電子伝導層が、1:1の比率でAlq3および金属リチウムを含むものである請求項5記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項7】 上記した複数の成膜材料源が、さら

に、正孔注入層成膜材料源と、正孔伝導層成膜材料源と、電子伝導層成膜材料源とを含むものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項8】 上記基板が、透明ガラス材料を含むものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項9】 上記基板が、透明プラスチック材料を含むものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項10】 上記陽極が、インジウムスズ酸化物を含むものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項11】 上記有機発光層が、Alq3を含む請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

【請求項12】 上記陰極が、アルミニウム、銦等の導電性の良好な金属から選ばれるものである請求項1または2記載の有機発光ダイオードの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、有機発光ダイオード (Organic Light Emitting Diode = OLED) の製造方法に関し、特に、ヘテロ接合 (hetero junction) をあいまい化 (非急峻化) する有機発光ダイオードの製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】有機発光ダイオードは、電気エネルギーを光エネルギーに変換することができるとともに、高い変換効率を有する半導体素子であり、よく見られる用途としては、表示ランプ、表示パネル、光学読書きヘッドの発光デバイス等がある。有機発光ダイオードデバイスは、例えば無視角であり、製造工程が容易で、低コストであり、高い応答速度を有し、使用温度の範囲が広く、フルカラー化されている等、いくつかの特性を備えているため、マルチメディア時代におけるディスプレイ特性ニーズに適合するものとして、現在、盛んに研究開発が行われている。

【0003】有機発光ダイオードの基本構造は、ガラス基板と、金属電極と、インジウムスズ酸化物電極と、有機発光層 (Emitting Layer) とを備えるものであって、有機発光ダイオードの基本発光原理は、金属電極を陰極とし、インジウムスズ酸化物電極を陽極として、順方向バイアスを両極間に印加すると、電子と正孔とがそれぞれ金属電極とインジウムスズ酸化物電極との界面から発光層へと注入されて、2種類のキャリアが発光層中に出会い、発光再結合 (Radiative Recombination) により光子 (Photon) を発生することで、発光現象を達成するものである。また、電子の伝導速度が正孔の伝導速度より速いことから、電子と正孔との伝導平衡パラメータを約1という条件にするために、インジウムスズ酸化物電極と発光層との間に正孔注入層 (Hole Injection Layer

= HIL) と正孔伝導層 (Hole Transport Layer = HTL) とを形成するとともに、発光層と金属電極との間に電子注入層 (Electron Injection Layer = EIL) と電子伝導層 (Electron Transport Layer = ETL) とを形成させることで、キャリアが材料の差異に応じて、電子と正孔との注入/伝導平衡を達成できるようにしている。

【0004】図1(a)(b)において、従来技術にかか有機発光ダイオードの製造プロセスの断面図を示す。図1(a)において、例えばガラス材料の基板100上にインジウムスズ酸化物の陽極101を形成させてから、陽極101上に有機発光層106を形成した後、有機発光層106上に金属材料の陰極110を形成するものである。同電極間に順方向バイアスが印加される時に、電子および正孔が、陽極101と陰極110とからそれぞれ有機発光層106へ注入され、2種類のキャリアが発光層106中で出会った時に、発光再結合により光子が発生される。図1(b)において、電子の伝導速度は正孔の伝導速度より速いことから、多くの有機発光ダイオードの製造方法では、電子注入層108・正孔注入層102・電子伝導層104等を加えて、そのヘテロ接合を利用することで、電子と正孔との伝導が平衡を保つようにしている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、従来技術により形成される有機発光ダイオードの3層あるいは3層以上の構造は、各層間の界面がヘテロ接合であるので、デバイスの物理的性質および電気的特性が劣ったものとなり、電子と正孔との発光再結合効率が低下していた。

【0006】そこで、この発明の目的は、ヘテロ接合をあいまい化(非急峻化)させて、電子ならびに正孔の発光再結合効率を向上させることができる有機発光ダイオードの製造方法を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決し、所望の目的を達成するために、この発明にかかる有機発光ダイオードの製造方法は、例えばガラスあるいはプラスチック材料からなる基板の上に陽極・有機発光層・陰極を例えば蒸着またはスパッタリングにより順層に形成するものである。このうち、陽極を例えばインジウムスズ酸化物とし、有機発光層を例えばAlq3とし、陰極を例えばアルミニウム、鉾等の導電性が良好な金属とするものである。陽極と有機発光層との界面を形成する時、まず、陽極の基板への成膜速度を徐々に低下させると同時に、有機発光層の基板への成膜速度を徐々に高めるようにし、また、有機発光層と陰極の界面を形成する時には、有機発光層の基板への成膜速度を徐々に低下させてゆくとともに、陰極の基板に対する成膜速度を徐々に高めることにより、陽極・有機発光層・陰極各層間に傾斜濃度分布を出現させる、つまり各層間のヘテロ接合をあいま

い化して、ヘテロ接合をあいまい化した有機発光ダイオードを形成するものである。

【0008】

【発明の実施の形態】<第1実施例>以下、この発明にかかる好適な実施例を図面に基づいて説明する。図2と図3とにおいて、この発明にかかる有機発光ダイオードの構造断面図を示す。図2において、各層の濃度を変化させることにより、有機発光ダイオードの3層構造接合を傾斜濃度分布とし、各層のヘテロ接合をあいまい化させるものである。まず、基板200上に陽極201を例えば蒸着またはスパッタリングによって形成し、陽極201が所望の厚さになる直前に、陽極201の成膜速度を徐々に低下させ、この時、有機発光層206の成膜速度を徐々に高める、有機発光層206を形成するようにしてから、有機発光層206を最適な成膜速度に維持するものである。次に、有機発光層206が所望の厚さになる直前に、有機発光層206の成膜速度を徐々に低下させ、この時、陰極210の成膜速度を徐々に高める、陰極210を形成するようにした後で、陰極210が所望の厚さになるまで陰極210の成膜速度を最適に維持することにより、3層構造の有機発光ダイオードを形成するものである。

【0009】図3において、電子と正孔との伝導平衡を達成させるために、3層以上の構造の有機発光ダイオードを形成することができ、やはり各層の濃度を変化させることによって、基板上における3層以上の構造の接合を傾斜濃度分布とし、各層間のヘテロ接合をあいまい化するが、例えば、基板200上に陽極201と正孔注入層202と正孔伝導層204と有機発光層206と電子注入層208と陰極210とを順層に形成して、各層の構造が所望の厚さに形成される直前に、その成膜速度を低下させると同時に、次に形成したい成膜材料の成膜速度を高めることにより、ヘテロ接合面に傾斜濃度分布を形成して、各層間のヘテロ接合をあいまい化し、有機発光ダイオード素子の物理的性質および電気特性を改善するものである。

【0010】図4から図5において、この発明の好適な実施例にかかる有機発光ダイオードの製造方法の装置説明図を示す。図4において、3個の成膜材料源を提供するが、この3個の成膜材料源は一直線に配列され、陽極成膜材料源301、有機発光層成膜材料源306、陰極成膜材料源310の順層となっているとともに、基板300を提供するが、基板300を例えば透明なガラスあるいはプラスチックとする。次に、基板300を成膜材料源の上方に固定するが、この基板300は、固定手段320によって水平方向の移動ならびに高速回転の持続が可能となるものである。そして、高速回転する基板300を陽極成膜材料源301の上方に移動すること陽極を形成し、陽極が所望の厚さとなる直前に、基板300を水平方向へゆっくりと有機発光層成膜材料源306

の上方にまで移動する。従って、基板300が陽極成膜材料源301から徐々に離れていく時、陽極の成膜速度は次第に低下するが、この時、この基板300は有機発光層成膜材料源306へ徐々に接近しているため、基板300上の有機発光層の成膜速度が次第に高まる。続いて、基板300が有機発光層成膜材料源306の真上にまで移動した時に、最適な成膜速度で有機発光層の堆積を行う。次に、陰極が所望の厚さに形成される直前に、基板300を陰極310の上方までゆっくりと移動する。従って、基板300が有機発光層300から次第に離れていく時、有機発光層の成膜速度が次第に低下するが、この時、基板300は陰極成膜材料源310へ徐々に近づいているところなので、基板300の陰極の成膜速度が次第に高まる。次に、基板300が陰極成膜材料源310の真上にまで移動してき、最適な成膜速度により陰極を形成するが、陰極が所望の厚さになるまで続けて、3層構造の有機発光ダイオードを形成するとともに、そのヘテロ接合が、各層を傾斜濃度分布としているため、ヘテロ接合をあいまい化した有機発光ダイオードが形成されるものである。

【0011】図5において、このような基板300を水平方向に移動させて有機発光ダイオードを形成する方法は、そのヘテロ接合をあいまい化することができる。また、3個以上の成膜材料源に適用して、3層以上の有機発光ダイオード構造の形成を可能なものとするものであって、例えば、陽極成膜材料源301、正孔注入層成膜材料源302、正孔伝導層成膜材料源304、有機発光層成膜材料源306、電子注入層成膜材料源308、陰極成膜材料源310をこの順番で一直線に配列させ、基板300を成膜材料源の上方に固定するとともに、高速回転を継続させてから、高速回転している基板300を陽極成膜材料源301上方に移動して陽極を形成するが、堆積したい厚さとなる前に、正孔注入層成膜材料源302の上方へとゆっくり移動させるものである。同様にして、その他の各層も順番に形成してゆくと、最後に3層以上の有機発光ダイオード構造を形成することができる。また、かつヘテロ接合をあいまい化することができる。

【0012】上述した方法により、基板300上に3層あるいは3層以上の有機発光ダイオード各層の界面が形成される時、完了した有機発光ダイオードの成膜速度をゆっくりと低下させると同時に、形成したい成膜材料の成膜速度を高めて、各層の界面に傾斜濃度分布を実現させると、ヘテロ接合をあいまい化した3層あるいは3層以上の構造の有機発光ダイオードを形成することができる。

【0013】＜第2実施例＞図6において、この発明にかかる好適な実施例に基づく有機発光ダイオードの製造方法の装置説明図を示す。図6において、3個の成膜材料源を提供し、これら3個の成膜材料源を成膜室中に均等に配分するものであって、それぞれ陽極成膜材料源401と有機発光層成膜材料源406と陰極成膜材料源4

10となっており、この3個の成膜材料源は、垂直方向の移動により成膜速度を変えることができるものである。また、基板400を提供するが、この基板400を例えばガラスまたはプラスチックとし、基板400を3個の成膜材料源の上方に固定するとともに、基板400が高速回転を続けるものである。先ず、垂直方向への移動により、陽極成膜材料源401を基板400付近まで上昇させて陽極を形成し、所望の厚さに形成される直前に、陽極成膜材料源401を降下させて、陽極成膜材料源401を基板400から徐々に遠ざけるので、基板400上の陽極の成膜速度が次第に低下するが、この時、有機発光層成膜材料源406を上昇させることで、有機発光層を徐々に形成するが、有機発光層成膜材料源406が基板400にゆっくりと近づくので、基板400上の有機発光層の成膜速度が次第に高まるものである。有機発光層成膜材料源406が最高位置にまで上昇した時、最適な成膜速度により基板400に有機発光層を形成する。そして、発光層が所望の厚さに形成される前に、有機発光層成膜材料源406を降下させるので、有機発光層成膜材料源406が基板400から徐々に遠ざかり、基板400上の有機発光層の成膜速度が次第に低下するが、この時、陰極成膜材料源410を高めてこのように陰極を徐々に形成し、陰極成膜材料源410が基板400へと次第に近づいていくため、基板400上における陰極の成膜速度が徐々に高まり、陰極成膜材料源410が最高位置にまで上昇した時、最適な成膜速度により形成したい陰極厚さとなるまで基板400に陰極を形成すると、3層構造の有機発光ダイオードが完成するとともに、ヘテロ接合をあいまい化することができる。

【0014】このような成膜材料源の垂直移動により形成される有機発光ダイオードは、ヘテロ接合のあいまい化を実現することができる。また、3個以上の成膜材料源に適用して、3層以上の有機発光ダイオード構造の形成を形成することができるものであって、例えば、陽極成膜材料源と、正孔注入層成膜材料源と、正孔伝導層成膜材料源と、有機発光層成膜材料源と、電子注入層成膜材料源と、陰極成膜材料源とを成膜室中に均等に配分してから、基板を成膜材料源の上方に固定し、持続的に高速回転させて、形成したい構造の成膜材料源を上昇させると、高速回転し続けている基板に各層の構造が形成され始め、所望の厚さになる直前に、この成膜材料源をゆっくりと降下させると同時に、次に形成したい構造の成膜材料源を上昇させるものである。同様に、3個以上の成膜材料源のステップを順番に行き、最後に3層以上の有機発光ダイオード構造が形成されて、有機発光ダイオードのヘテロ接合をあいまい化することができるので、デバイスの物理的性質ならびに電気特性を改善することができる。

【0015】成膜材料源を垂直に移動してその成膜速度を制御することにより、成膜材料源昇降の加速度と成膜

速度との関係を利用して、基板に対する成膜速度を制御することができる。仮に、成膜材料源から基板までの距離を $L$ とすれば、 $L$ と成膜速度との関係は、数式1の通りとなる。

【0016】

【数1】

$$\text{成膜速度} \propto \left(\frac{1}{L}\right)^2$$

【0017】 加速度により成膜源の基板に対する成膜率を補正することができ、成膜速度と $L$ との関係式は、数式2の通りとなる。

【0018】

【数2】

$$\text{成膜速度} \propto \left(\frac{1}{L}\right)$$

【0019】 従って、成膜材料源が昇降する加速度の大きさを制御することで、堆積させたいヘテロ接合のあいまい化の度合いを制御することができる。

【0020】 以上のごとく、この発明を好適な実施例により開示したが、もとより、この発明を限定するためのものではなく、当業者であれば容易に理解できるように、この発明の技術思想の範囲内において、適当な変更ならびに修正が当然なされるものであるから、その特許権保護の範囲は、特許請求の範囲および、それと均等な領域を基準として定めなければならない。

【0021】

【発明の効果】 上記構成により、この発明にかかる有機発光ダイオードの製造方法は、2種類の特長的手段により、有機発光ダイオードを形成し、そのヘテロ接合の界面をあいまい化し、無層構造の有機発光ダイオードを形成できるので、ヘテロ接合の界面が明確すぎて有機発光ダイオード素子の物理的特性および電気特性を劣化させていた従来技術を改善することができる。従って、産業上の利用価値が高い。

【図面の簡単な説明】

【図1】 (a) (b) は、従来技術にかかる有機発光ダイオードの構造断面図である。

【図2】 この発明にかかる好適な実施例に基づく有機発光ダイオードの構造断面図である。

【図3】 この発明にかかる好適な実施例に基づく有機発光ダイオードの構造断面図である。

【図4】 この発明にかかる好適な実施例の有機発光ダイオード製造方法に基づく装置説明図である。

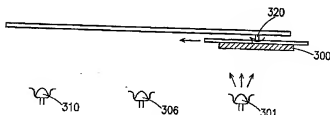
【図5】 この発明にかかる好適な実施例の有機発光ダイオード製造方法に基づく装置説明図である。

【図6】 この発明にかかる好適な実施例の有機発光ダイオード製造方法に基づく装置説明図である。

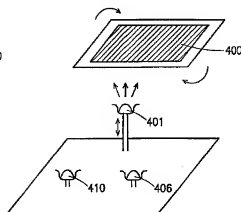
【符号の説明】

- 200 基板
- 201 陽極
- 202 正孔注入層
- 204 正孔伝導層
- 206 有機発光層
- 208 電子注入層
- 210 陰極
- 300 基板
- 301 陽極成膜材料源
- 302 正孔注入層成膜材料源
- 304 正孔伝導層成膜材料源
- 306 有機発光層成膜材料源
- 308 電子注入層成膜材料源
- 310 陰極成膜材料源
- 320 基板の固定手段
- 400 基板
- 401 陽極成膜材料源
- 402 正孔注入層成膜材料源
- 404 正孔伝導層成膜材料源
- 406 有機発光層成膜材料源

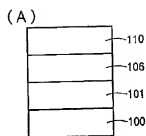
【図4】



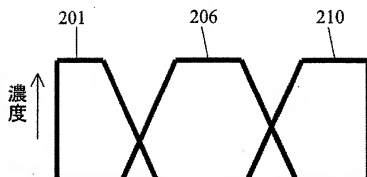
【図6】



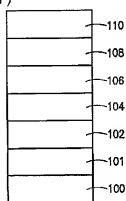
【圖1】



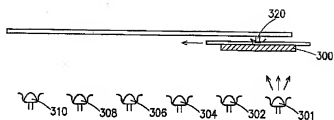
【圖2】



(B)



【圖5】



【図3】

